

**Die Reaktionsquerschnitte von $S(n, \alpha)$ Si
und $S(n, p)$ P für Neutronenenergien
von 2,2 bis 4,0 MeV**

Inauguraldissertation

**zur Erlangung der philosophischen Doktorwürde
vorgelegt der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Basel**

von

Theodor Hürlimann

aus Basel

Basel

Buchdruckerei Birkhäuser AG.

1955

Die Reaktionsquerschnitte von $S(n, \alpha)$ Si
und $S(n, p)$ P für Neutronenenergien
von 2,2 bis 4,0 MeV

Inauguraldissertation

zur Erlangung der philosophischen Doktorwürde
vorgelegt der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Basel

von

Theodor Hürlimann

aus Basel

Basel

Buchdruckerei Birkhäuser AG.

1955

Genehmigt von der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen
Fakultät auf Antrag der Herren Professoren P. HUBER und
E. BALDINGER.

Basel, den 15. Juni 1954.

Prof. Dr. E. BALDINGER

Dekan.



Die Reaktionsquerschnitte von $S(n, \alpha) Si$ und $S(n, p) P$ für Neutronenenergien von 2,2 bis 4,0 MeV

von T. Hürlimann.

Summary: The reactions $S^{32}(n, p)P^{32}$, $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ and $S^{32}(n, \alpha)Si^{29*}$ leading to the ground state of P^{32} and the ground and first excited states of Si^{29} , resp., have been studied by use of an ionization chamber filled with SO_2 . Pulses were analysed by means of an pulse spectrometer.

The cross-sections for the three reactions are complicated functions of neutron energy. The (n, p) and (n, α) reactions occur with approximately equal frequency, but cross-section maxima for the two reactions do not coincide. The ratio

$$\sigma[S(n, \alpha) Si^*] / \sigma[S(n, \alpha) Si]$$

is much greater than would be expected from Coulomb barrier penetration argument.

1. Einleitung.

Beim Bestrahlen von Schwefel mit schnellen Neutronen treten die beiden Reaktionen $S(n, \alpha) Si$ und $S(n, p) P$ auf.

Von der $S(n, p) P$ -Reaktion ist mit Ionisationskammern die Wärmetönung zu $Q = -0,93 \pm 0,1 \text{ MeV}^1)$ bestimmt worden, was in vollkommener Übereinstimmung mit dem aus der maximalen Beta-Energie von P^{32} $^2)$ berechneten Wert ist. Der Reaktionsquerschnitt wurde verschiedentlich $^{3-5)}$ mit Hilfe der Beta-Aktivität der bestrahlten Schwefelproben gemessen. Da die absolut bestimmten Werte $^3) ^4)$ um rund einen Faktor 3 differieren, erschien es uns wünschenswert, diese Reaktion nochmals auszumessen.

Der Reaktionsquerschnitt von $S(n, \alpha) Si$ ist bisher nur für die Neutronenenergie von 2,76 MeV bestimmt worden $^1)$. Der von STEBLER und P. HUBER $^6)$ gemessene Q -Wert von $1,16 \pm 0,15 \text{ MeV}$ steht im Widerspruch mit massenspektroskopischen Daten von OGATA und MATSUDA $^7)$, welche zu einem Q -Wert von $1,559 \pm 0,023 \text{ MeV}$ führen. Die Reaktionswärme lässt sich auch aus den Q -Werten der Umwandlungen $P^{31}(d, \alpha) Si^{29} \text{ } ^8)$, $P^{31}(d, p) P^{32} \text{ } ^8)$ und $S^{32}(n, p) P^{32} \text{ } ^1)$ (bzw. $P^{32}(\beta^-) S^{32} \text{ } ^2)$) zu $Q = 1,524 \pm 0,017 \text{ MeV}$ berechnen.

Das Ziel dieser Arbeit ist, den Verlauf des Reaktionsquerschnittes dieser beiden Schwefelumwandlungen als Funktion der Neutronenenergie im Bereiche von 2 bis 4 MeV zu bestimmen.

2. Messmethode und Apparate.

Die Kernumwandlungen werden durch Neutronen in einer Ionisationskammer ausgelöst. Die im Füllgas (SO_2) erzeugten Ionen werden im elektrischen Feld gesammelt, die elektrischen Impulse linear verstärkt und in einem 19-Kanalimpuls-Spektrographen registriert, so dass die Anzahl der Reaktionen direkt aus dem Spektrogramm abgelesen werden kann. Als Neutronenmonitor wird ein HORNYAK-Detektor⁹⁾ verwendet, der starr an der Kammer montiert ist.

2.1. Ionisationskammer.

Um den Randeffekt möglichst klein zu halten, wurde eine Zylinderkammer verwendet. Sie ist im Schnitt in Figur 1 abgebildet. Als Isoliermaterial bewährte sich bei dem verwendeten Füllgas Glas.

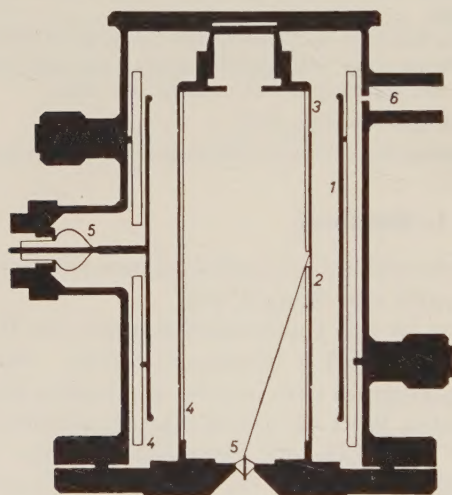


Fig. 1.

- Ionisationskammer im Schnitt.
 1 Hochspannungselektrode,
 2 Auffängerelektrode,
 3 Schutzring,
 4 Glasrohre zur Isolation,
 5 Kovar-Glas-Durchführungen,
 6 Nadelventil.

Die Sammelelektrode wurde auf ein Glasrohr aufgezogen und auch die Hochspannungselektrode innerhalb eines Glasrohres montiert. Die Zuführung der Hochspannung (10 kV) und der Abgriff der Kammerimpulse erfolgte über Kovar-Glas-Einsmelzungen. Die Kammer bestand aus Eisen. Gummiringe sorgten für die Abdichtung.

2.2. Kammerfüllung.

Als Füllgas bewährte sich SO_2 am besten. Sein Dampfdruck beträgt bei Zimmertemperatur 3 ata. Schwefeldioxyd besitzt allerdings sehr schlechte Sättigungseigenschaften¹⁰⁾, da sich SO_2^- -Ionen bilden, die leicht mit den positiven Ionen rekombinieren.

Das Schwefeldioxyd wurde durch Zersetzen von Na_2SO_3 in gesättigter wässriger Lösung mit H_2SO_4 conc. dargestellt. Das Gas

wurde mit $CaCl_2$ und P_2O_5 getrocknet und fraktioniert destilliert. Der Einfülldruck wurde an einem Quecksilbermanometer abgelesen. Eventuelle Verunreinigungen weisen bei $-180^\circ C$ und kleinem Volumen einen Druck von weniger als 0,5 mm Hg auf.

Um die Reichweite der Reaktionsprodukte und damit den Randeffect zu verkleinern, wurde dem SO_2 zusätzlich Argon beigelegt (Argon aus Druckflasche; Reinheit 99,8%). Die meisten Messungen erfolgten mit der Füllung (bezogen auf $15^\circ C$): 1524 Torr SO_2 und 3365 Torr A. Sie entspricht einem mittleren Bremsvermögen von 7,91 bezogen auf Normalluft.

2.3. Neutronenmonitor.

Als Neutronenmonitor wurde ein HORNYAK-Detektor⁹⁾ verwendet, dessen Szintillationen mit einem RCA-5819-Multiplier nachgewiesen wurden. Seine Empfindlichkeit wurde vor und nach jeder Messung mit einer 100 mC Ra-Be-Quelle in einer Standardstellung nachgeprüft. Diese wurde so gewählt, dass der Monitor eben auf den γ -Untergrund anzusprechen begann, wodurch die Empfindlichkeit des Zählers sehr genau eingestellt werden konnte. Eine Änderung der Multiplierspannung von 1 Volt bei 800 V bewirkt eine Änderung der Empfindlichkeit für D-D-Neutronen ($E_n = 3,5$ MeV) von 0,66%, dagegen gegenüber der Ra-Be-Quelle von 4%.

SEITZ¹¹⁾ hat die Ansprechwahrscheinlichkeit eines HORNYAK-Zählers mit Hilfe einer schnellen Wasserstoff-Rückstoss-Ionisationskammer gemessen und mittels des bekannten n-p-Streuquerschnittes absolut bestimmt. Aus Vergleichsmessungen konnten wir auf die Empfindlichkeit des von uns verwendeten Neutronenmonitors schliessen. Diese Bestimmungen dürften auf 7% genau sein. Zur Kontrolle der so gewonnenen Ansprechwahrscheinlichkeit wurde die Winkelverteilung der D-D-Neutronen gemessen, die sich in guter Übereinstimmung mit bekannten Daten¹²⁾ ergab.

2.4. Verstärker und Impulsspektrograph.

Der verwendete Impulsverstärker und Impulsspektrograph ist schon andernorts¹³⁾¹⁴⁾ beschrieben worden. Der relative Energiemaßstab der Spektrogramme wird in der üblichen Weise mittels Eichimpulsen festgelegt, die von einem elektronischen Impulsgerät über eine Eichkapazität auf den Vorverstärker gegeben werden.

2.5. Neutronenquelle.

Die Neutronen*) werden mittels der D-D-Reaktion erzeugt¹³⁾¹⁵⁾. Der beschleunigte Deuteronenstrahl trifft auf eine dünne Target von

*) Der Neutronengenerator wurde von der Firma Haefeli & Cie., Basel, geliefert.

D₂O, deren Dicke jeweils unter der Annahme einer planparallelen Eisschicht berechnet wurde. Die Variation der Neutronenenergie erfolgte, indem unter verschiedenen Bestrahlungsrichtungen in bezug auf die Deuteroneneinfallsrichtung und bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen gemessen wurde. Der Berechnung der Neutronenenergie liegt der von Li et al.¹⁶⁾ angegliche Q -Wert für die $D(d,n)He^3$ -Reaktion $Q = 3,268 \pm 0,004$ MeV zugrunde.

Die Neutronen werden parallel zur Achse der Ionisationskammer eingestrahlt. Das Energiespektrum jener Neutronen, die in der Kammer Reaktionen auslösen, wird verursacht durch die endliche Dicke

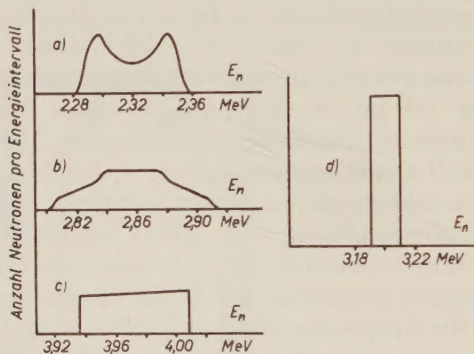


Fig. 2.

Neutronenspektren für die Messpunkte:

- | | |
|--------------------------|---------------------------|
| a) $2,320 \pm 0,033$ MeV | b) $2,858 \pm 0,038$ MeV |
| c) $3,972 \pm 0,036$ MeV | d) $3,200 \pm 0,010$ MeV. |

der D₂O-Target, durch den endlichen Raumwinkel, den die Ionisationskammer, von der Target aus gesehen, einnimmt, sowie durch die Streuung von Neutronen an den Kammerwänden. Die von den beiden ersten Effekten herrührende Verbreiterung der Neutronenenergie wurde jeweils berechnet und in Figur 2 für vier Messpunkte aufgezeichnet. In Figur 2a überwiegt der zweite Effekt, dagegen bei Energien $> 3,1$ MeV (Fig. 2c und 2d) die Verschmierung durch die Targetdicke. Die berechneten Breiten liegen zwischen 20 und 80 keV, so dass die Abstände der Messpunkte zu rund 50 keV gewählt werden. Die Verbreiterung des Energiespektrums durch Streuung haben wir nicht berücksichtigt. Da der Streuquerschnitt von Eisen für Neutronen der betrachteten Energie ungefähr konstant bleibt¹⁷⁾, so sollte die Verfälschung des Neutronenenergiespektrums bei allen Messpunkten etwa die gleiche sein.

3. Messungen.

3.1. Auftretende Reaktionen.

Wir betrachten zunächst alle Reaktionen, die wir mit Hilfe unserer Messanordnung für die gewählten Gasfüllungen registrieren könnten.

Um festzustellen, ob an den Elektroden oder im Argon, das als zusätzliches Bremsgas Verwendung fand, geladene Partikel ausgelöst werden, wurden Messungen mit reinem Argon als Füllgas durchgeführt. Die Zahl der gemessenen Impulse war aber so niedrig, dass diese bei unseren Messungen nicht berücksichtigt zu werden braucht.

Die relativen Isotopenhäufigkeiten von Schwefel wurden von HIBBS¹⁸⁾ bestimmt: S^{32} 95,00%, S^{33} 0,74%, S^{34} 4,24%, S^{36} 0,017%. An diesen Kernen sind folgende Reaktionen möglich:

$S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$: Wie wir in der Einleitung gesehen haben, ist dieser Umwandlung eine Wärmetönung von $1,524 \pm 0,017$ MeV zuzuordnen. Sie tritt mit relativ grosser Häufigkeit auf.

$S^{32}(n, p)P^{32}$: Die Reaktionswärme wurde von P. HUBER¹⁾ zu $Q = -0,93 \pm 0,10$ MeV bestimmt. Auch diese Umwandlung ist häufig, wie die gemessenen Reaktionsquerschnitte³⁻⁵⁾ zeigen.

$S^{34}(n, \alpha)Si^{31}$: Aus den Massenwerten von S^{32} und Si^{31} nach LI¹⁹⁾ und der Massendifferenz von $S^{34}-S^{32}$ nach OGATA und MATSUDA⁷⁾ lässt sich eine Wärmetönung $Q = -1,316 \pm 0,060$ MeV berechnen. Diese Reaktion kommt daher energiemässig in die Nähe der $S^{32}(n, p)P^{32}$ -Umwandlung zu liegen und könnte die Auswertung der Spektrogramme erschweren. Die geringere Häufigkeit von S^{34} und der negative Q -Wert sprechen aber dafür, dass diese Reaktion erst bei höheren Neutronenenergien wirksam in Erscheinung treten könnte.

$S^{34}(n, p)P^{34}$: Diese Reaktion wurde von BLEULER und ZÜNTI²⁰⁾ dank der Beta-Aktivität von P^{34} nachgewiesen, wobei das obere Ende des Beta-Spektrums bei 5,1 MeV liegt. Daraus leitet sich für die $S^{34}(n, p)P^{34}$ -Reaktion eine Wärmetönung $Q = -4,3$ MeV ab, weshalb wir diese Kernumwandlung nicht beobachten.

$S^{33}(n, \alpha)Si^{30}$: Nach Angaben von LI¹⁹⁾ ist dieser Reaktion ein Q -Wert von $3,495 \pm 0,055$ MeV zuzuordnen. Sie sollte daher in den Spektrogrammen deutlich von den übrigen Reaktionen getrennt wahrgenommen werden. Sie wurde jedoch von uns nicht beobachtet, was wahrscheinlich auf die geringe Isotopenhäufigkeit von S^{33} zurückzuführen ist.

$S^{33}(n, p)P^{33}$: Diese Kernumwandlung ist schon mit Pile-Neutronen erhalten worden. NICHOLS und JENSEN²¹⁾ finden als maximale Beta-Energie beim Zerfall von P^{33} 249 ± 2 keV, woraus sich als Wärmetönung für die $S^{33}(n, p)$ -Reaktion $Q = 0,536 \pm 0,006$ MeV

ergibt. Ein Einfluss auf unsere Messungen scheint jedoch wegen des geringen Vorkommens des Ausgangskernes unwahrscheinlich.

Da S^{36} eine viel geringere Häufigkeit als S^{33} besitzt, werden Reaktionen an diesem Isotop von uns kaum wahrgenommen.

Von den Reaktionen an Sauerstoff ist bekannt, dass die Reaktion $O^{16}(n, \alpha)C^{13}$ vorherrscht^{11) 22)}. Die Wärmetönung von $Q = -2,38 \pm 0,16$ MeV ist so stark negativ, dass diese Reaktion deutlich von der $S^{32}(n, p)$ -Umwandlung getrennt werden kann.

Von den übrigen Reaktionen an Sauerstoff verdient nur noch $O^{17}(n, \alpha)C^{14}$ Beachtung, da diese Umwandlung eine Wärmetönung von $Q = 1,825 \pm 0,019$ MeV¹⁶⁾ besitzt und daher in unseren Spektrogrammen kaum von $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ getrennt werden kann. Wegen der kleinen Isotopenhäufigkeit des O^{17} von 0,0374%²³⁾ wird auch diese Reaktion unsere Messung kaum stören.

3.2. Impulsspektrogramme.

Für jeden Messpunkt wurden meistens mehrere Spektrogramme aufgenommen. Die Auswertung der Aufnahmen für denselben Punkt ergaben im allgemeinen Übereinstimmung, die weit innerhalb der abgeschätzten Genauigkeit lag. Nur eine einzige Messung

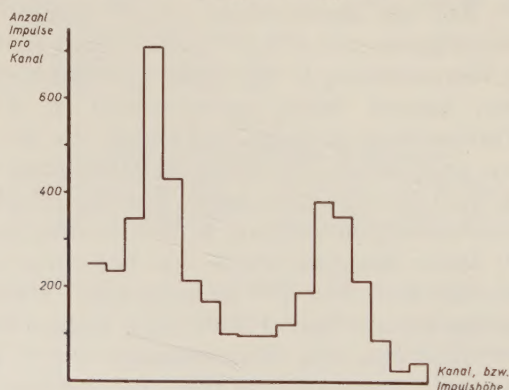


Fig. 3.

Spektrogramm einer Messung für den Punkt $E_n = 2,74 \pm 0,04$ MeV.

bei 3,520 MeV zeigte für die α -Reaktion eine derart grosse Abweichung, dass sie weit ausserhalb der Fehlergrenzen zu liegen kam und weggelassen wurde.

Ein typisches Spektrogramm der auftretenden Reaktionen ist in Figur 3 abgebildet. Als Abszisse wird die Impulshöhe (Kanal des Impulsspektrographen) in willkürlichen Einheiten aufgetragen, als Ordinate die Anzahl der registrierten Impulse pro Kanal. In den obersten Kanälen erkennen wir die Impulse der $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ -Reak-

tion, während diejenigen der $S^{32}(n, p)P^{32}$ -Reaktion in den tieferen Kanälen auftreten. Die Breite der Reaktionsgruppen wird zur Hauptsache durch das Sättigungsdefizit verursacht. Da die Ionisierungsdichten (und damit die Sättigungsdefizite) der Protonen, Alphateilchen, Si- und P-Kerne voneinander stark abweichen und sich die Energie je nach Emissionsrichtung unterschiedlich auf das ausgesandte Teilchen und den Rückstosskern verteilt, findet eine Verbreiterung der registrierten Reaktionsgruppen statt. Ausserdem hängt ja auch der Sättigungsverlust von der Richtung der Teilchenspuren in bezug auf die elektrische Feldrichtung ab und von der Grösse der Feldstärke, welche innerhalb der zylinderförmigen Ionisationskammer ändert.

Das Sättigungsdefizit kann durch Reduktion des Fülldruckes verkleinert werden. Dabei werden die Impulsgruppen enger, andererseits wird aber der Randeffect grösser (siehe Figur 4). Der Umstand,

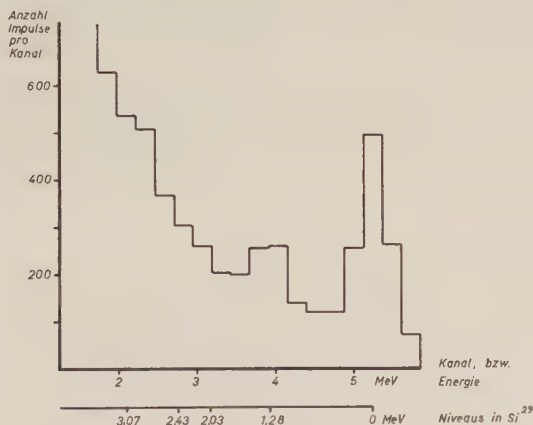


Fig. 4.

Spektrogramm einer Messung mit kleinem Sättigungsdefizit, aber grossem Randeffect. $E_n = 3,76$ MeV.

dass das Sättigungsdefizit für α -Teilchen und Si-Rückstoskerne verschieden ist, erklärt nicht nur die Breite der $S(n, \alpha)$ -Gruppe, sondern ist vermutlich auch für den von STEBLER und HUBER⁶⁾ zu klein bestimmten Q -Wert dieser Reaktion verantwortlich.

3.3. Randeffect.

Unter Randeffect ist der Ladungsverlust von Teilchenspuren zu verstehen, welche die Begrenzungsflächen des empfindlichen Kammerolumens durchsetzen. All jene Reaktionen, welche Randeffect erleiden, fallen in den Spektrogrammen nicht mehr in die Reaktions-

gruppen, sondern geben Beiträge in Kanälen, die kleineren Impulshöhen entsprechen. Unsere Messungen sind daher auf Randeffect zu korrigieren.

Zur Berechnung des Randeffectes machen wir folgende Annahmen:

a) Die Reichweite der Spuren ist klein gegenüber den Kammerdimensionen, so dass wir den Einfluss der Krümmung der Zylinderflächen (Auffänger- und Hochspannungselektroden) vernachlässigen können.

b) Die Reichweite der Spuren ist konstant. Emissionsrichtung und Neutronenspektrum sind ohne Einfluss.

c) Die Emission der Reaktionsprodukte erfolgt im Laborsystem isotrop.

Die Annahme a) erlaubt, für die Rechnungen die Begrenzungsflächen des Kammervolumens als Ebenen zu betrachten. Sie ist für die $S(n, \alpha)$ -Reaktion sehr gut erfüllt und für die $S(n, p)P$ -Umwandlung gerechtfertigt, da sich der Einfluss der Krümmung der beiden Elektroden auf den Randeffect in erster Näherung genau kompensiert.

Die Annahme b) dagegen ist nur schlecht erfüllt. Ein Polardiagramm der Reichweite R_α von α -Teilchen aus der $S(n, \alpha)$ -Umwandlung erhält in sehr guter Näherung als Envelope eine Kugelfläche

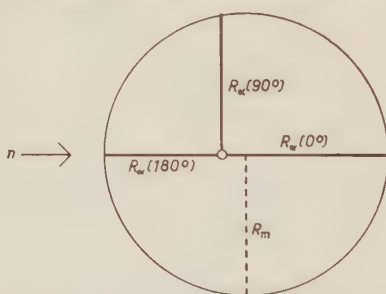


Fig. 5.

Polardiagramm der Reichweite R_α von α -Teilchen aus der Reaktion $S(n, \alpha)Si$.
 $E_n = 3,5 \text{ MeV}$.

(Fig. 5). Der Radius dieser Kugel wurde als mittlere Reichweite R_m benützt:

$$R_m = \frac{R_\alpha(0^\circ) + R_\alpha(180^\circ)}{2} \approx R_\alpha(90^\circ).$$

$R_\alpha(\vartheta)$ bedeutet die Reichweite der unter dem Winkel ϑ gegen die Neutroneneinflussrichtung emittierten α -Teilchen. Der hauptsächlichste Randeffect erfolgt durch die Elektroden, das heisst unter $\vartheta = 90^\circ$, da die Neutronen parallel zur Achse der Zylinderkammer eingestrahlt wurden. Somit wird auch diese Annahme b) im allge-

meinen von geringem Einfluss auf unsere Resultate sein. Die analogen Betrachtungen wurden bei den Reaktionsprotonen und Si^{29} -Kernen angestellt.

Als Energie-Reichweite-Beziehung für α -Teilchen und Protonen dienten die Angaben von BETHE²⁴⁾ und LIVINGSTON und BETHE²⁵⁾. Für die Si^{29} - und P^{32} -Reichweite wurden Daten von leichteren Kernen²⁶⁾ und Fissionsprodukten²⁷⁾ interpoliert. Der Verlauf der Energie-Reichweite-Beziehung wurde im Füllgas als affin zum Verlauf der Beziehung in Luft angesehen.

Die obigen Betrachtungen wurden an der $N^{14}(n, \alpha)C^{11}$ -Reaktion kontrolliert. Als Kammerfüllung diente eine bestimmte Menge Stickstoff, welcher verschiedene Mengen Argon beigemischt wurden. Jede Füllung wurde unter gleichen Bedingungen mit Neutronen beschossen. Die Reaktionsgruppen wurden ausgezählt und nach der oben diskutierten Weise auf Randeffect erleidende Kernumwandlungen korrigiert. Die einzelnen Ergebnisse stimmen innerhalb der statistischen Fehler miteinander überein, womit die obigen Betrachtungen gerechtfertigt erscheinen.

Die Grösse des Randeffectes hängt vom Bremsvermögen der verwendeten Gasfüllung und von der Neutronenenergie ab. Sie beträgt für die $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ -Reaktion 14–19%, für die $S^{32}(n, p)P^{32}$ -Umwandlung 20–62%.

3.4. $S^{32}(n, \alpha)Si^{29*}$.

Bei der Auswertung der Spektrogramme zeigt es sich (siehe Fig. 3), dass die relativ grosse Anzahl von Impulsen zwischen den α - und p-Gruppen durch den Randeffect der α -Teilchen und Si^{29} -Kerne nicht erklärt werden kann. Aufnahmen mit besserem Auflösungsvermögen (Kammerfüllung: 0,64 ata SO_2), aber mit grossem Randeffect, zeigen, dass zwischen der α - und p-Impulsgruppe noch eine weitere Gruppe auftritt (Fig. 4). Diese kann jedoch nicht der $S^{33}(n, p)P^{33}$ -Umwandlung zugeordnet werden, da sie wegen des relativ kleinen Randeffectes als (n, α) -Reaktion gedeutet werden muss. Da die Gruppe keiner der diskutierten Kernumwandlungen zugeschrieben werden kann, besteht die einzige Möglichkeit, sie der Reaktion $S^{32}(n, \alpha)Si^{29*}$ zuzuordnen, wo der Endkern Si^{29} im ersten angeregten Zustand gebildet wird. Dieses erste Niveau wurde bei $P^{31}(d, \alpha)Si^{29-8}$ und $Si^{28}(d, p)Si^{29}$ -Reaktionen²⁸⁾ gefunden. VAN PATER und BUECHNER²⁸⁾ bestimmten die Anregungsenergie zu $1,278 \pm 0,007$ MeV. Dieser Wert würde sehr gut mit der Lage der Impulsgruppe in Figur 4 übereinstimmen. Weitere angeregte Niveaus konnten wegen der grossen Zahl von $S(n, p)P$ -Impulsen nicht festgestellt werden.

3.5. Auswertung der Spektrogramme.

Die Anzahl der einzelnen Reaktionen erhält man durch Auszählen der entsprechenden Impulsgruppen in den Spektrogrammen (vgl. Fig. 3). Dazu müssen diese Gruppen nach kleineren und grösseren Impulshöhen abgegrenzt werden. Reaktionen an Stickstoff mit entsprechendem Sättigungsdefizit und Randeffect zeigen einen symmetrischen Verlauf der Impulsgruppen, so dass auch hier eine symmetrische Gruppenform angenommen wurde.

Der durch das Abschneiden eingeführte Fehler wird bei der α -Reaktion auf 3% geschätzt, bei der p-Umwandlung auf ca. 8%. Insgesamt wurden für 41 verschiedene Neutronenenergien Impulsspektrogramme aufgenommen. Die einzelnen Messpunkte sind im Mittel aus einer Statistik von 2200 S(n, α)Si-Reaktionen und entsprechend so viel S(n,p)P-Umwandlungen gewonnen worden, so dass ihr statistischer Fehler rund 2% beträgt.

Auch die Anzahl der S(n, α)Si*-Umwandlungen wurde aus dem Verlauf des Spektrogramms nach Abzug der S(n, α)Si-Reaktionen abgeschätzt. Die Genauigkeit der so gewonnenen Werte dürfte höchstens 30% betragen.

Bei Neutronenenergien von über 3,7 MeV stimmt der berechnete Randeffect sehr schlecht mit der gemessenen Impulsverteilung überein. Das Abgrenzen der (n,p)-Impulsgruppe und die Korrektur auf Randeffect erfolgte, als würde die Diskrepanz nicht auf ein Versagen unserer Annahmen zur Berechnung des Randeffectes zurückzuführen sein, sondern auf das Auftreten weiterer Reaktionen, zum Beispiel $O^{16}(n,\alpha)C^{13}$, $S^{34}(n,\alpha)Si^{31}$ oder $S^{32}(n,p)P^{32*}$. SEITZ und HUBER¹¹⁾ haben nachgewiesen, dass in der Tat bei dieser Energie die Neutronenreaktion an Sauerstoff merklich aufzutreten beginnt. Bei $E_n \geq 4,0$ MeV ist diese Reaktion wahrscheinlich dafür verantwortlich, dass sich unsere Impulsspektrogramme für die S(n,p)P-Umwandlung nicht mehr auswerten lassen.

4. Ergebnisse.

Die durch Auszählen der Spektrogramme ermittelten Reaktionszahlen korrigierten wir auf Nulleffect, Randeffect, Zählverluste (ca. 2%) und Fülldruckschwankungen. Die so gewonnenen Zahlen wurden mit Hilfe der vom Monitor registrierten Neutronen und dessen Ansprechwahrscheinlichkeit in Reaktionsquerschnitte umgerechnet, die wir in Figur 6 und 7 aufgezeichnet haben. Die Empfindlichkeitsschwankungen des Monitors (meistens weniger als 0,5% während 30 Minuten) sind korrigiert. Die Genauigkeit der aufgetragenen Daten wird begrenzt durch statistische Fehler und durch

die Willkür beim Abgrenzen der Impulsgruppen, sowie durch die Genauigkeit der Monitorempfindlichkeitswerte. Bei der Berechnung des Randeffektes begangene Fehler können nicht abgeschätzt wer-

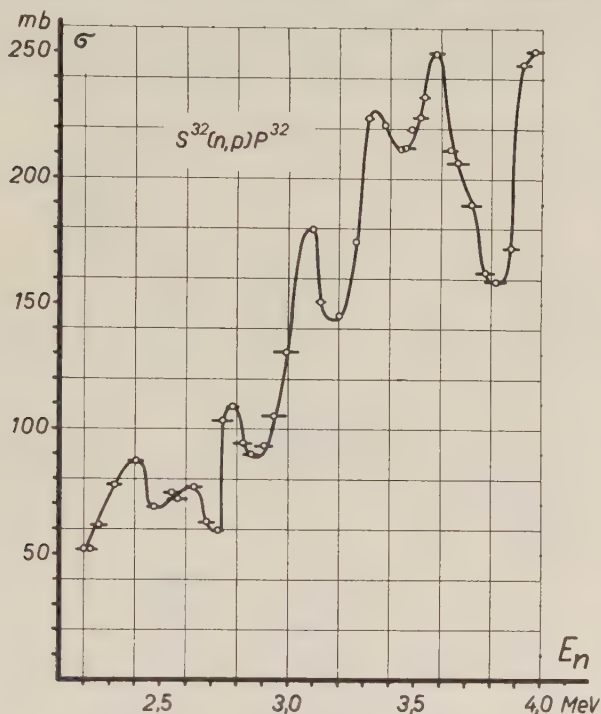


Fig. 6.

Reaktionsquerschnitt von $S^{32}(n,p)P^{32}$.

den. Als mittlere Fehler der Querschnittsdaten können folgende Werte angegeben werden: $S(n,\alpha)Si$ 8%, $S(n,p)P$ 12%, $S(n,\alpha)Si^*$ 30–50%.

5. Diskussion.

Beim Vergleich unserer Messungen mit bekannten Resultaten finden wir, dass gute Übereinstimmung zwischen unseren Werten und den Daten von KLEMA und HANSON⁴⁾ für die $S(n,p)P$ -Reaktion herrscht. Diese Daten sind nur für einzelne Neutronenenergien mit schlechter Energieauflösung gemessen worden und zeigen daher keinen resonanzartigen Verlauf des Reaktionsquerschnittes. Einen solchen Verlauf haben, wie wir, auch BLEULER³⁾ und LÜSCHER et al.⁵⁾ gefunden. Jedoch liegen die Querschnitte von BLEULER um einen Faktor 3 bis 4 tiefer als unsere und jene von KLEMA und HANSON. Indem LÜSCHER et al. ihre Daten über die $S(n,p)P$ -Umwandlung

an die absoluten Werte von KLEMA und HANSON angleichen, erhalten jene Autoren einen Reaktionsquerschnitt, der ungefähr mit dem von uns gefundenen im gemeinsam ausgemessenen Energieintervall übereinstimmt. Die relativen Maxima (bei $E_n = 2,40; 2,62; 2,78; 3,08; 3,34$ und $3,58$ MeV) und Minima treten nur unwesentlich verschoben in ungefähr derselben Ausgeprägtheit auf. Da beide

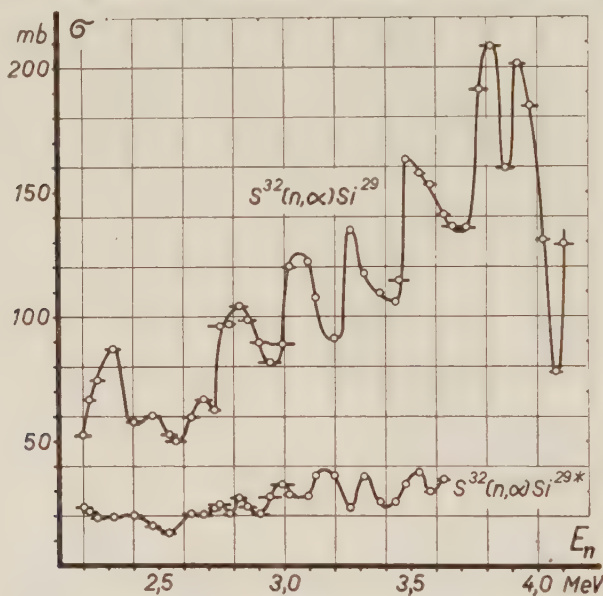


Fig. 7.

Reaktionsquerschnitte von $S^{32}(n, \alpha)Si^{29}$ und $S^{32}(n, \alpha)Si^{29*}$.

Messungen nach verschiedenen Methoden durchgeführt wurden (Ionisationskammermessung und Bestimmung der Aktivität von P^{32}), scheinen systematische Fehler ausgeschlossen, welche diesen komplexen Verlauf der Wirkungsquerschnittskurve bedingen würden.

Von der $S(n, \alpha)Si$ -Reaktion liegt nur eine Messung vor. P. HUBER¹⁾ fand mit dicker Target bei $E_n = 2.76$ MeV einen Wirkungsquerschnitt $\sigma = 0,065$ barns, was mit unseren Daten vereinbar ist.

Ein Vergleich der Querschnittskurven der Reaktionen $S(n, \alpha)Si$ und $S(n, p)P$ zeigt, wie wir schon in einer früheren Notiz²⁹⁾ besprochen haben, dass beide Kurven mit der Neutronenenergie ansteigen und beide eine komplexe Struktur zeigen. Dabei erscheint uns aber als sehr bemerkenswert, dass die relativen Maxima und Minima beider Kernumwandlungen im allgemeinen nicht zusammenfallen, was besonders deutlich im Verlauf des Verzweungsverhältnisses (Fig. 8) hervortritt.

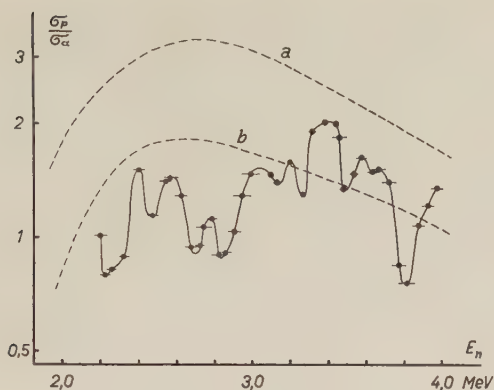


Fig. 8.

- Verzweungsverhältnis der $S(n, \alpha)Si$ - und $S(n, p)P$ -Reaktion als Funktion der Neutronenenergie E_n (—•— Messpunkte mit berechnetem Auflösungsvermögen).
 - - - - - Berechnetes Verhältnis der Durchdringungswahrscheinlichkeiten durch die Coulomb-Barriere. Als effektive Kernradien wurden bei der α -Emission $R = R_0 \cdot \sqrt[3]{A} + 1,21 \cdot 10^{-13}$ cm und bei der Protonenemission $R = R_0 \cdot \sqrt[3]{A}$ cm benutzt, wobei im Falle a) $R_0 = 1,3 \cdot 10^{-13}$ cm und im Falle b) $R_0 = 1,5 \cdot 10^{-13}$ cm angenommen wurde.

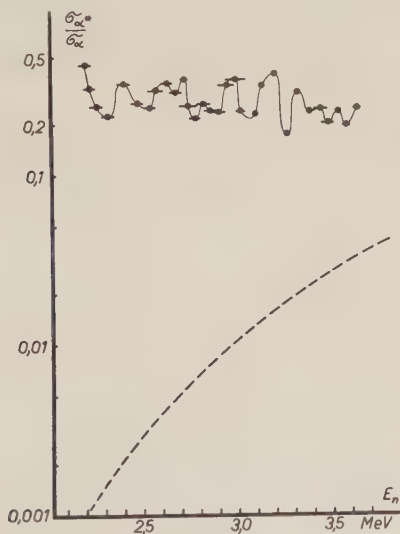


Fig. 9.

- Verzweungsverhältnis der $S(n, \alpha)Si^*$ - und $S(n, \alpha)Si$ -Reaktion als Funktion der Neutronenenergie E_n .
 - - - - - Verhältnis der Transmissionswahrscheinlichkeiten durch die Coulomb-Barriere.

Ähnliche Verhältnisse wurden an N^{14} beobachtet. Die Reaktionsquerschnitte von $N(n, \alpha)B$ und $N(n, p)C$ und der totale Streuquerschnitt zeigen unter sich durchaus nicht einen affinen Verlauf^{30) 31)}. JOHNSON und BARSCHALL³⁰⁾ deuteten diese Erscheinung mit Hilfe von Paritäts- und Drehimpulseigenschaften der beteiligten Niveaus des Zwischenkerns und der Endkerne.

Auch in unserem Falle, beim Schwefel, dürfte der Unterschied im Verlauf der Querschnittskurven durch solche Kerneigenschaften verursacht sein. Es muss also angenommen werden, dass gewisse Niveaus des Zwischenkerns den Zerfall in einen bestimmten der möglichen Reaktionskanäle begünstigen. Diese Bevorzugung wird wahrscheinlich bedingt durch die Parität und den Spin sowohl des Zwischenkerns im hochangeregten Niveau als auch von den Endkernen P^{32} , Si^{29} und Si^{29*} . Da Si^{29} im Grundzustand den Spin $1/2$ ³²⁾, P^{32} dagegen den Spin 2 oder 3³³⁾ besitzt, ist eine derartig unterschiedliche Begünstigung der Reaktionen durchaus denkbar. Nach Messung und Deutung von $Si^{28}(d, p)$ -Experimenten von HOLT und MARSHAM³⁴⁾ ist das überschüssige Neutron des Si^{29} -Kerns im Grundzustand in einem $s_{1/2}$ -, im ersten angeregten Niveau in einem $d_{3/2}$ - Zustand anzunehmen. Daher kann auch die resonanzartige Struktur des Verzweungsverhältnisses zwischen den beiden Reaktionen $S(n, \alpha)Si^*$ und $S(n, \alpha)Si$ durch solche Niveaueigenschaften erklärt werden. Die von uns gemessene Kurve ist jedoch mit grossen Fehlern behaftet und daher brauchen die in Figur 9 eingezeichneten Schwankungen nicht alle reell zu sein.

Zum gemessenen Verlauf der Querschnittskurven ist noch zu bemerken, dass die einzelnen Resonanzen keineswegs aufgelöst sind. Der mittlere Niveauabstand im hochangeregten Zwischenkern lässt sich nach BLATT und WEISSKOPF³⁵⁾ zu rund 17 keV abschätzen. Unsere Messungen wurden mit Neutronen durchgeführt, deren Energiespektrum eine Breite von 20 bis 80 keV aufweist, und daher stellen die einzelnen Messpunkte eine Mittelung über zwei bis fünf Niveaus dar.

Der allgemeine Verlauf der Reaktionsquerschnitte kann mit Hilfe der Kontinuumsstheorie³⁵⁾ diskutiert werden. Obwohl die Voraussetzungen für die Gültigkeit dieser Arbeitshypothese nur zum Teil erfüllt sind, ist zu erwarten, dass mindestens das Verzweungsverhältnis auch quantitativ abgeschätzt werden kann.

Unter Benützung der Tabellen von SHAPIRO³⁶⁾ haben wir das Verhältnis der Transmissionen der Reaktionsprodukte (Alpha-Teilchen und Proton) durch die Coulomb-Barriere berechnet und in Figur 8 und 9 mit den gemessenen Verzweungsverhältnissen verglichen. Die Rechnungen wurden unter der Annahme durchgeführt,

dass die emittierten Teilchen den Zwischenkern mit dem Bahndrehimpuls 0 verlassen. Als effektive Kernradien wurden bei der α -Emission $R = R_0 \cdot \sqrt[3]{A} + 1,21 \cdot 10^{-13}$ cm und bei der Protonenemission $R = R_0 \cdot \sqrt[3]{A}$ cm benützt mit $R_0 = 1,3 \cdot 10^{-13}$ und $R_0 = 1,5 \cdot 10^{-13}$ cm.

Wir erkennen in Figur 8, dass das Verzweigungsverhältnis der $S(n, p)P$ - und $S(n, \alpha)Si$ -Reaktionen recht gut wiedergegeben wird durch das Verhältnis der Durchdringungswahrscheinlichkeiten durch die Coulomb-Barriere. Das Verhältnis der Häufigkeit beider Reaktionen (abgesehen von Resonanzerscheinungen) ändert sich im betrachteten Neutronenenergieintervall nur unwesentlich und ist von der Grössenordnung 1.

Dagegen finden wir keine Übereinstimmung zwischen dem gemessenen Verzweigungsverhältnis $\sigma[S(n, \alpha)Si^*]:\sigma[S(n, \alpha)Si]$ und den Aussagen der Kontinuumstheorie (Fig. 9). Das Verhältnis der Durchdringungswahrscheinlichkeiten (wiederum abgesehen von Resonanzen) sollte sehr empfindlich von der Neutronenenergie abhängen und höchstens einige Hundertstel betragen. Statt dessen finden wir ein ungefähr konstantes Verhältnis von zwei bis drei Zehntel. Für die Berechnungen wurde der Kernradius von Si^{29} und Si^{29*} , auf dessen Wert das Resultat ganz unempfindlich ist, als gleich gross angenommen. Die Diskrepanz kann auch nicht durch unterschiedliche Aufenthaltswahrscheinlichkeiten des α -Teilchens im Feld des entsprechenden Endkerns (Si^{29} bzw. Si^{29*}) erklärt werden, da die aus der Niveaudichte berechnete Kerntemperatur³⁵⁾ zu hoch ist.

Es scheint vernünftig, diese Resultate mit den entsprechenden Reaktionen an A^{36} zu vergleichen, da sich diese beiden Kerne nur um ein α -Teilchen unterscheiden. TOPPEL und BLOOM³⁷⁾ haben die Wirkungsquerschnitte von $A^{36}(n, \alpha)S^{33}$ und $A^{36}(n, \alpha)S^{33*}$ gemessen. Daraus ist trotz der grossen Messfehler ebenfalls eine entsprechende Diskrepanz zwischen gemessenem und berechnetem Verzweigungsverhältnis festzustellen.

Es ist noch auf die Tatsache hinzuweisen, dass bei den betrachteten Reaktionen die zerfallenden Zwischen- und Endkerne jeweils grad-ungrad-Kerne sind. Auch bei den natürlich vorkommenden α -Strahlern ist bei den grad-ungrad-Kernen eine Unregelmässigkeit in den Verzweigungsverhältnissen beobachtet³⁸⁾, indem der Endkern stets zu häufig im angeregten Zustand (verglichen mit dem Zerfall in den Grundzustand) gebildet wird.

Die vorliegende Arbeit wurde an der Physikalischen Anstalt der Universität Basel ausgeführt. Sie entstand unter der Anleitung ihres Vorstehers, Herrn Prof. Dr. P. HUBER. Ihm bin ich für wertvolle Ratschläge und Hilfe zu herzlichstem Dank verpflichtet.

Literatur.

- 1) P. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **14**, 163 (1941).
- 2) K. SIEGBAHN, *Phys. Rev.* **70**, 127 (1946).
- 3) E. BLEULER, *Helv. Phys. Acta* **20**, 519 (1947).
- 4) E. D. KLEMA und A. O. HANSON, *Phys. Rev.* **73**, 106 (1948).
- 5) F. LÜSCHER, R. RICAMO, P. SCHERRER und W. ZÜNTI, *Helv. Phys. Acta* **23**, 561 (1950).
- 6) A. STEBLER und P. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **21**, 59 (1948).
- 7) K. OGATA und H. MATSUDA, *Phys. Rev.* **89**, 27 (1953).
- 8) D. M. VAN PATTTER, A. SPERDUTO, P. M. ENDT, W. W. BUECHNER und H. A. ENGE, *Phys. Rev.* **85**, 142 (1952).
- 9) W. F. HORNYAK, *Rev. Scient. Instr.* **23**, 264 (1952).
- 10) C. BIBER, A. MÜLLER und P. HUBER, erscheint demnächst in den *Helv. Phys. Acta* **28** (1955).
- 11) J. SEITZ und P. HUBER, erscheint demnächst in den *Helv. Phys. Acta*.
- 12) A. O. HANSON, R. F. TASCHEK und J. H. WILLIAMS, *Rev. Mod. Phys.* **21**, 635 (1949).
- 13) H. BICHSEL, W. HÄLG, P. HUBER und A. STEBLER, *Helv. Phys. Acta* **25**, 119 (1952).
- 14) E. BALDINGER und R. CASALE, *Helv. Phys. Acta* **21**, 172 (1948).
- 15) E. BAUMGARTNER und P. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **26**, 545 (1953).
- 16) C. W. LI, W. WHALING, W. A. FOWLER und C. C. LAURITSEN, *Phys. Rev.* **83**, 512 (1951).
- 17) H. B. WILLARD, I. BAIR und I. KINGTON, unveröffentlicht, siehe „Neutron Cross Sections“, AECU-2040, 1952.
- 18) R. F. HIBBS, zitiert in *Nuclear Data Supl.* **1**, NBS 499.
- 19) C. W. LI, *Phys. Rev.* **88**, 1038 (1952).
- 20) E. BLEULER und W. ZÜNTI, *Helv. Phys. Acta* **19**, 137 (1946).
- 21) R. T. NICHOLS und E. N. JENSEN, *Phys. Rev.* **94**, 369 (1954).
- 22) P. HUBER, E. BALDINGER und W. G. PROCTOR, *Helv. Phys. Acta* **24**, 303 (1951).
- 23) A. O. NIER, *Phys. Rev.* **77**, 789 (1950).
- 24) H. A. BETHE, *Rev. Mod. Phys.* **22**, 213 (1950).
- 25) M. S. LIVINGSTON und H. A. BETHE, *Rev. Mod. Phys.* **9**, 245 (1937).
- 26) J. KNIPP und E. TELLER, *Phys. Rev.* **59**, 659 (1941).
- 27) N. O. LASSEN, *Dan. Mat. Fys. Medd.* **25**, 11 (1949).
- 28) D. M. VAN PATTTER und W. W. BUECHNER, *Phys. Rev.* **87**, 51 (1952).
- 29) P. HUBER und T. HÜRLIMANN, *Helv. Phys. Acta* **27**, 155 (1954).
- 30) C. H. JOHNSON und H. H. BARSCHALL, *Phys. Rev.* **80**, 818 (1950).
- 31) C. H. JOHNSON, B. PETREE und R. K. ADAIR, *Phys. Rev.* **84**, 775 (1951).
- 32) G. A. WILLIAMS, D. W. McCALL und H. S. GUTOWSKY, *Phys. Rev.* **93**, 1428 (1954).
- 33) H. M. AGNEW, *Phys. Rev.* **77**, 655 (1950).
- 34) J. R. HOLT und T. N. MARSHAM, *Proc. Phys. Soc.* **66A**, 467 (1953).
- 35) J. M. BLATT und V. F. WEISSKOPF, *Theoretical Nuclear Physics*, John Wiley & Sons, New York 1952.
- 36) M. M. SHAPIRO, *Phys. Rev.* **90**, 171 (1953).
- 37) B. J. TOPPEL und S. D. BLOOM, *Phys. Rev.* **91**, 473 (1953).
- 38) I. PERLMAN, A. GHIORSO und G. T. SEABORG, *Phys. Rev.* **77**, 26 (1950).

CURRICULUM VITAE.

Am 2. Juni 1926 wurde ich, THEODOR HÜRLIMANN, in Luzern geboren, als Sohn des Albert Hürlimann, Graveur, von Basel und der Hildy, geb. Lutz.

Die Primarschulen besuchte ich in Weehawken (N.J., USA) und in Basel. Nach sechs Schuljahren im Basler Realgymnasium wechselte ich ins Mathematisch-Naturwissenschaftliche Gymnasium, wo ich nach zwei weiteren Jahren im Frühling 1945 die Maturitätsprüfung Typus C bestand.

Hierauf studierte ich an der Universität Basel Physik mit den Nebenfächern Chemie, Mathematik und Theoretische Physik. Vorlesungen, Übungen und Praktika besuchte ich bei den Herren Professoren Baldinger, Buchner, Erlenmeyer, Fierz, Hediger, Huber, Miescher, Mohler, Ostrowski, von der Pahlen, Speiser, Zamboni und Zickendraht. Die vorliegende Arbeit begann ich 1951. Seit Januar 1952 bin ich Assistent an der Physikalischen Anstalt der Universität Basel.

